

令和元年6月17日現在

機関番号：82706

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H05471

研究課題名(和文) 海洋生態系・同位体分子種モデルで解明する海洋N₂O排出プロセスの気候変動への応答研究課題名(英文) Nitrogen isotopomer modeling for prediction of N₂O emission form the ocean

研究代表者

吉川 知里 (YOSHIKAWA, Chisato)

国立研究開発法人海洋研究開発機構・生物地球化学研究分野・技術研究員

研究者番号：40435839

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、海洋からのN₂O放出量を従来よりも正確に見積もる目的で、海洋生態系・同位体分子種モデルを開発した。一次元モデルを、西部北太平洋の亜熱帯定点(St.S1)と亜寒帯定点(St.K2)に適用し、本研究で行った各種同位体観測との比較から、両海域における年間N₂O放出量の見積りと、放出プロセスの解明を行った。また、窒素固定と脱窒を含む全球モデルを構築し、観測と矛盾しない全球窒素同位体分布を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

N₂Oは、自身が主要な温室効果ガスであるとともに、成層圏に輸送されると光酸化反応を経てオゾン層の破壊に関与する。このことから、N₂Oの収支や変動要因の理解は、地球温暖化対策やオゾン層保護において重要な研究課題であると考えられている。しかし、N₂Oの総排出量の見積もり幅はまだ極めて大きく、各排出起源の見積もりの高精度化が求められている。海洋は重要な排出源であるが、未だ大きな見積もり幅を持つ。本研究では、同位体分子種を用いることで、N₂O生成プロセスを陽に扱ったモデルを開発した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we developed a marine ecosystem and isotopomer coupled model to estimate an accurate flux of marine N₂O emission. We applied our 1D model to the subtropical station (S1) and the subarctic station (K2) in the western North Pacific. We compared the results with our isotopic observation, estimated annual N₂O emissions at stations S1 and K2 and revealed emission processes. Moreover, we developed global model and achieved global isotopic distributions compatible with observation.

研究分野：同位体地球化学

キーワード：地球化学 一酸化二窒素 海洋生態系モデル 同位体分子種

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

N_2O は、自身が主要な温室効果ガスであるとともに、成層圏に輸送されると光酸化反応を経てオゾン層の破壊に関与する。このことから、 N_2O の収支や変動要因の理解は、地球温暖化対策やオゾン層保護において重要な研究課題であると考えられている。しかし、 N_2O の総排出量の見積もり幅は $8.1-30.7 \text{ TgNyr}^{-1}$ と極めて大きく (IPCC, 2013)、各排出起源の見積もりの高精度化が求められている。

海洋は総排出量の21%を占める重要な排出源である。海洋における主な N_2O 生成過程は硝化 (ヒドロキシルアミン酸化) と硝化菌脱窒・脱窒 (亜硝酸還元) であり、主な消滅過程は脱窒 (N_2O 還元) である。いずれも生物活動に深いかかわりを持つため、海洋からの N_2O 排出フラックスは時空間的不均一性が極めて高い。このため、フラックスの直接観測以外にも、溶存 O_2 濃度をもとにした推定、海洋 N_2O 循環モデリング、インバースモデルによる逆推定など、これまで海洋からの N_2O 排出量の見積もりは様々な手法が試みられてきたが、 $1.8-9.4 \text{ TgN yr}^{-1}$ と未だに大きな幅を持つ (IPCC, 2013)。

N_2O には主に、 $^{14}N^{14}N^{16}O$ 、 $^{14}N^{15}N^{16}O$ 、 $^{15}N^{14}N^{16}O$ 、 $^{14}N^{14}N^{18}O$ の同位体分子種がある。 N_2O の分子内 ^{15}N 分布 (SP 値: $^{14}N^{15}NO$ と $^{15}N^{14}NO$ の同位体比の差) から、「硝化」と「硝化菌脱窒・脱窒」を識別することができる。硝化によって生成した N_2O の SP 値は 33%、硝化菌脱窒・脱窒によって生成した N_2O の SP 値は 0% を示し (Sutka et al, 2004, 2006)、脱窒による N_2O 消滅時の SP と ^{15}N の分別係数の比は 1:2 であると報告されている (Ostrom et al., 2007 など)。

これらをもとに、さまざま環境試料について SP と ^{15}N を組み合わせた解析が行われ、硝化と脱窒の寄与率や脱窒による N_2O 消滅の進行度が推定されている (Yamagishi et al., 2007; Charpentier et al., 2007, Koba et al., 2009 など)。海洋において N_2O 濃度と O_2 濃度は逆相関関係を示す。これまでの海洋 N_2O 循環モデルでは、この逆相関関係をもとに作られた経験式と、モデルで予報した O_2 濃度から、間接的に N_2O 濃度が予報され、現在や将来の N_2O 排出量が見積もられてきた (Suntharalingam and Sarmiento, 2000; Jin and Gruber, 2003; Schmittner and Galbraith, 2008; Rickels et al., 2010; Zamora and Oschlies, 2014)。しかし、実際の海洋において、硝化と脱窒とは、全く異なるメカニズムで N_2O 濃度と O_2 濃度が変化する。 O_2 は有機物分解時に消費されるが N_2O は有機物分解後の硝化で生成する。また、水塊・堆積物中などにおいて O_2 が欠乏すると酸化剤として硝酸が代わりに消費される脱窒が起こり、 N_2O が生成される。そしてさらに、無酸素に近い状態になると、そのほとんどが N_2 に還元される (Codispoti, 2010 など)。

本研究に先立ち Yoshikawa et al. (2016) は、海洋からの N_2O 排出量を見積もるために、同位体分子種を検証材料とし、「硝化」と「硝化菌脱窒」を陽に扱う海洋生態系・同位体分子種モデル (図1実線矢印) を構築した。しかし、貧酸素水塊からの N_2O 排出量は比較的大きいことが知られているため (Olivier et al., 1996 など)、また、温暖化が進行すると貧酸素水塊が拡大することが予想されているため (Bopp et al., 2003 など)、現在・将来の全球排出量を見積もるためには、同モデルへの「脱窒」プロセスの導入が不可欠である。

2. 研究の目的

本研究では、 N_2O 循環解析の強力な指標である同位体分子種 (アイソトプマー) を用いることで、濃度情報のみではその識別が難しかった「硝化」「硝化菌脱窒」「脱窒」による N_2O 生成・消滅を、陽に扱った海洋生態系モデルを開発し、海洋からの N_2O 排出量を見積もる。

3. 研究の方法

本研究では、以下の様な計画・方法でモデル開発を進めた。

(1) 鉛直一次元への拡張

研究開始当初から続けてきた西部北太平洋の亜寒帯亜熱帯定点 (K2・S1) における同位体比測定結果をもとに、Yoshikawa et al. (2016) の「海洋生態系・同位体分子種モデル (図1の実線矢印)」を、Mellor-Yamada の混合層モデルへ結合させ、鉛直一次元へ拡張した。

(2) 「窒素固定」の導入

海洋地球研究船「みらい」の平成27年12月～平成28年1月に行われた MR15-05-leg2 と、平成30年11月～1月に行われた学術研究船「白鳳丸」の KH-18-6 Leg3 航海の東部インド洋 WOCE-I10 側線の航海に参加し、 N_2O 、硝酸、植物プランクトンの窒素同位体比測定用試料の採取と、硝化・硝化菌脱窒速度測定用の船上培養を行った。これらの同位体比測定結果と Coles

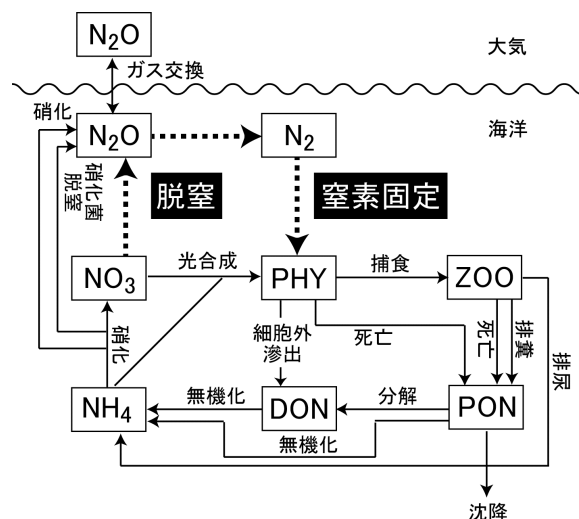


図1: モデルの概念図。PHY (植物プランクトン)、ZOO (動物プランクトン)、PON (粒子状有機物)、DON (溶存有機物)、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 N_2O 、 N_2 からなる。点線矢印を新たに導入した。

et al. (2007)の窒素固定アルゴリズムをもとに、モデルへ窒素固定(図1の点線矢印)を導入した。

(3) 「脱窒」の導入

海洋地球研究船「みらい」の平成29年1月から平成29年2月に行われた MR16-09-Leg2 の南部チリ沖の航海と、平成30年11月～1月に行われた学術研究船「白鳳丸」の KH-18-6 Leg2 のベンガル湾の航海に参加し、 N_2O 、硝酸、植物プランクトンの窒素同位体比測定用試料の採取を行った。これらの同位体比測定結果と Shigemitsu et al. (2016)の水中・海底堆積物中の脱窒アルゴリズムをもとに、モデルへ脱窒(図1の点線矢印)を導入した。

(4) 全球への展開

本研究で開発したモデル(図1の実線・点線矢印)と、あらかじめ大気海洋結合モデル(MIROC3.2)によって計算された産業革命前の海洋物理場を用いて、オフライン計算を行った。

4. 研究成果

(1) 鉛直次元モデル

鉛直次元モデルで計算した硝酸濃度と同位体比は、観測と非常に良く一致した。K2 では、6月よりも7月の方が、硝酸濃度が低く、同位体比が高いという特徴を再現できた。S1 では、表層で硝酸が枯渇し、亜表層で深層よりも同位体比が低いという特徴を再現できた。モデルで計算したクロロフィル濃度と同位体比も、観測と概ね一致した。モデルはクロロフィルの濃度極大が、K2 では表層、S1 では亜表層に見られるという特徴を再現できた。また同位体比が、クロロフィル極大以浅では表層方向に高く、以深では深層方向に高いという特徴を再現できた。

モデルで計算した N_2O 濃度と同位体比も、観測と概ね一致した。モデルは N_2O 濃度が、S1 よりも K2 の方が高いという特徴を再現でき(図2)、SP 値(N_2O の中央と末端の窒素の同位体比の差)が、表層付近で大気に近い値を示し、亜表層付近では硝化の寄与を受けて高い値を示すという特徴を再現できた。亜表層付近の SP 値は、S1 よりも K2 の方が高い値を示し、モデルの硝化速度も K2 の方がだかい速い値を示した。同モデルを用いて行った感度実験の結果から、K2 ではほぼ硝化によって、S1 では硝化と硝化菌脱窒によって N_2O が生成していることが示唆された。

モデルで推定した年間 N_2O 放出フラックスは、K2 で $34 \text{ mgN/m}^2/\text{yr}$ 、S1 で $2 \text{ mgN/m}^2/\text{yr}$ であり、S1 よりも K2 の方が、はるかに放出量が多い(図2黒線)。これは K2 の方が、一次生産量が多いことに伴い、硝化速度が速いため、硝化に付随した N_2O 生成量が多いためであると考えられる。また、K2 は、深層大循環の終着地点であるため、亜表層以下の水塊は、年齢が古く、硝化によって生成された N_2O を多く含むためであると考えられる。同モデルを用いて行った感度実験の結果から、非微生物活動(ガス交換や海水混合)のみによる年間 N_2O 放出フラックスは、K2 で $13 \text{ mgN/m}^2/\text{yr}$ 、S1 で $0 \text{ mgN/m}^2/\text{yr}$ であり、K2・S1 とともに、 N_2O 放出量に対して、深層からの N_2O 供給の寄与よりも、現場の微生物活動の寄与の方が、大きいことが示唆された(図2赤線)。

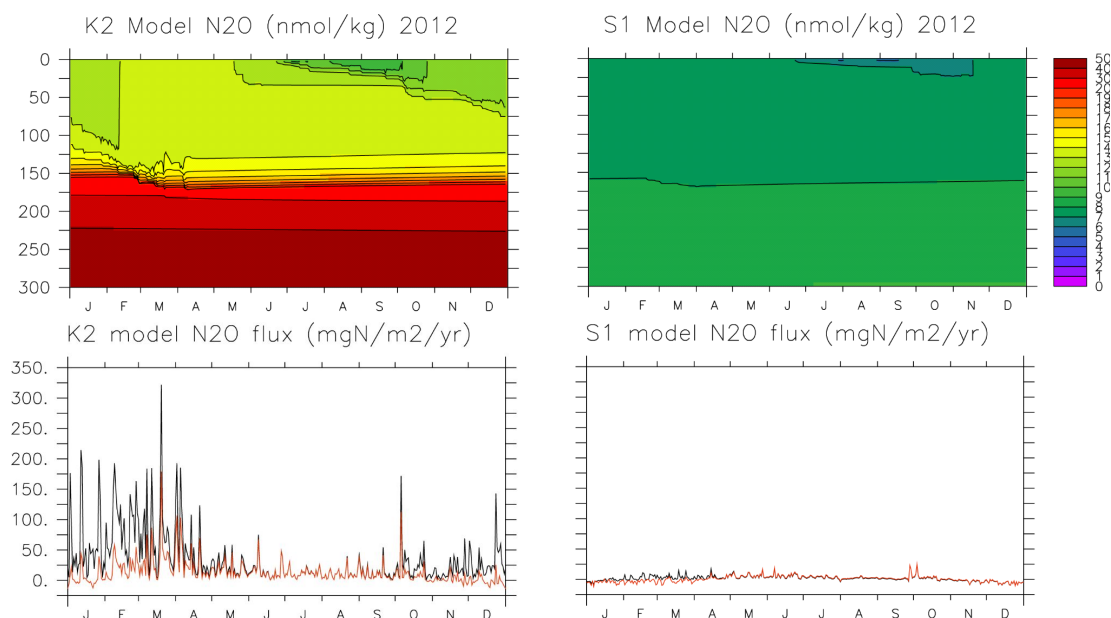


図2: モデルを用いて計算した St.K2 と S1 の溶存 N_2O 濃度(上)と N_2O 放出フラックス(下)。黒線は、現場の微生物活動と非微生物活動(ガス交換や海水混合)による N_2O 放出フラックスを示し、赤線は、非微生物活動(ガス交換や海水混合)のみによる N_2O 放出フラックスを示している。

(2) 全球モデル

窒素固定と脱窒を導入した全球モデルで計算した有光層の粒子状有機物の窒素同位体比は、東部北太平洋、東部南太平洋、インド洋などの水柱の脱窒速度が速い海域で高い窒素同位体比を示し、サ

ルガツ海や黒潮続流域、インド洋東部などで窒素固定が速い海域で低い窒素同位体比を示すなど、Tesdal et al. (2013)の表層堆積物に含まれる全窒素の窒素同位体比測定値の全球分布とよく一致し、本研究によって、全球の窒素同位体循環を再現できるモデルが完成した。

本研究で開発した全球モデルの硝化と硝化菌脱窒による N_2O 放出は、これまでの観測や知見と矛盾しない結果が得られた。しかし、脱窒による N_2O 放出はまだうまく再現できていない。今後は、脱窒が活発に起こる海域において脱窒による N_2O 生成速度の観測を行い、スキームの改良を行いたいと考えている。

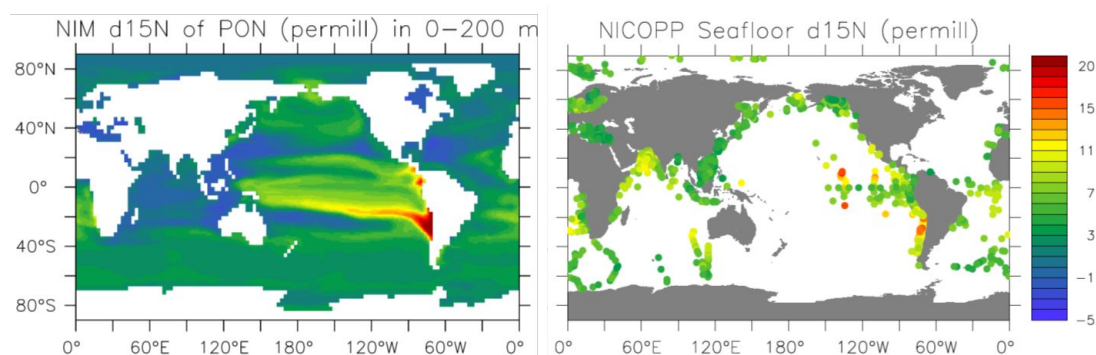


図3: 全球モデルを用いて計算した有光層の粒子状有機物の窒素同位体比(右)と NICOPP データベースの表層堆積物の窒素同位体比(Tesdal et al., 2013)(左)。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計7件)

1. Kawagucchi, S., Makabe, A., Kodama, T., Matsui, Y., Yoshikawa, C., Ono, E., Wakita, M., Nunoura, T., Uchida, H., and Yokokawa, T. (2018) Hadal water biogeochemistry over the Izu-Ogasawara Trench observed with a full-depth CTD-CMS. *Ocean Science*, 14(4), 575-588. doi:10.5194/os-2018-37. (査読あり)
2. Yasunaka, S., Nojiri, Y., Hashioka, T., Yoshikawa, C., Kodama, T., Nakaoka, S., Chiba, S., Hashihama, F., Wakita, M., Furuya, K., Sasano, D., Murata, A., Uchida, H., and Aoyama, M. (2018) Basin-scale distribution of NH_4^+ and NO_2^- in the Pacific Ocean. *Journal of Oceanography*, 74(1), 1-11. doi:10.1007/s10872-017-0433-1. (査読あり)
3. Yoshikawa, C., Makabe, A., Matsui, Y., Nunoura, T., and Ohkouchi, N. (2018) Nitrate isotope distribution in the subarctic and subtropical North Pacific. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 19(7), 2212-2224. doi:10.1029/2018GC007528. (査読あり)
4. Honda, M.C., Wakita, M., Matsumoto, K., Fujiki, T., Siswanto, E., Sasaoka, K., Kawakami, H., Mino, Y., Sukigara, C., Kitamura, M., Sasai, Y., Smith, S.L., Hashioka, T., Yoshikawa, C., Kimoto, K., Watanabe, S., Kobari, T., Nagata, T., Hamasaki, K., Kaneko, R., Uchimiya, M., Fukuda, H., Abe, O., and Saino, T. (2017) Comparison of carbon cycle between the western Pacific subarctic and subtropical time-series stations: highlights of the K2S1 project. *Journal of Oceanography*, 73(5), 647-667. doi:10.1007/s10872-017-0423-3. (査読あり)
5. Sasai, Y., Yoshikawa, C., Smith, S.L., Hashioka, T., Matsumoto, K., Wakita, M., Sasaoka, K., and Honda, M.C. (2016) Coupled 1-D physical-biological model study of phytoplankton production at two contrasting time-series stations in the western North Pacific. *Journal of Oceanography*, 72(3), 509-526. doi:10.1007/s10872-015-0341-1. (査読あり)
6. Yoshikawa, C., Abe, H., Aita, M.N., Breider, F., Kuzunuki, K., Toyoda, S., Ogawa, N.O., Suga, H., Ohkouchi, N., Danielache, S.O., Wakita, M., Honda, M.C., and Yoshida, N. (2016) Insight into nitrous oxide production processes in the western North Pacific based on a marine ecosystem isotopomer model. *Journal of Oceanography*, 72(3), 491-508. doi:10.1007/s10872-015-0308-2. (査読あり)
7. Breider, F., Yoshikawa, C., Abe, H., Toyoda, S., and Yoshida, N. (2015) Origin and fluxes of nitrous oxide along a latitudinal transect in western North Pacific: Controls and regional significance. *Global Biogeochemical Cycles*, 29(7), 1014-1027. doi:10.1002/2014GB004977. (査読あり)

[学会発表] (計14件)

1. 吉川知里, 眞壁 明子, 松井 洋平, 布浦 拓郎, 大河内 直彦, Nitrate isotope distributions in the eastern Indian Ocean, JpGU 2018
2. 吉川知里, 重光雅仁, 山本彬友, 岡頭, 大河内直彦, 海洋窒素同位体モデルで窒素同位体比の季節変化の海域特性を明らかにする, 2018 年度日本地球化学会年会

3. Chisato Yoshikawa, Akiko Makabe, Yohei Matsui, Takuro Nunoura, Naohiko Ohkouchi, Nitrate isotope distributions in the subarctic and subtropical North Pacific, JpGU 2018
4. Chisato Yoshikawa, Haruyo Yamaguchi, Nanako O. Ogawa, Akiko Makabe, Yohei Matsui, Nitrogen isotopic ratios of phytoplankton in the western subtropical North Pacific, 2018 Ocean Science Meeting
5. Chisato Yoshikawa, Yoshikazu Sasai, Akiko Makabe, Florian Breider, Sakae Toyoda, Yohei, Development of a model of nitrous oxide in the western North Pacific, JpGU-AGU Joint Meeting 2017
6. Yoshikawa C., Ogawa NO, Chikaraishi Y, Makabe A, Matsui Y, Kawagucci S, Sasai Y, Aita M. N, Wakita M, Honda M. C, Fujiki T, Harada N, Ohkouchi N, Nitrogen isotope ratios of sinking particles record autumn progress of nitrification, ASLO 2017 Aquatic Sciences Meeting
7. Yoshikawa C., Ogawa N, Chikaraishi Y, Fujiki T, Harada N, Honda M & Ohkouchi N, Seasonal Variations in Nitrogen Isotope Ratios of Amino Acid of Settling Particles in the Western Subarctic North Pacific, Goldschmidt 2016
8. Chisato Yoshikawa, Yoshikazu Sasai, S. Lan Smith, Akiko Makabe, Takuro Nunoura, Masahide Wakita, Makio Honda, Development of a marine ecosystem model including nitrite, Japan Geoscience Union Meeting (JpGU 2016)
9. Chisato Yoshikawa, Nanako O. Ogawa, Yoshito Chikaraishi, Tetsuichi Fujiki, Naomi Harada, Makio Honda, Naohiko Ohkouch, Surface nitrogen cycle in the western subarctic North Pacific revealed by nitrogen isotope ratios of amino acid of settling particle, Japan Geoscience Union Meeting (JpGU 2016)
10. Chisato Yoshikawa, Haruyo Yamaguchi, Nanako O. Ogawa, Hisami Suga, Akiko Makabe, Yohei Matsui, Shinsuke Kawagucci, Tetsuichi Fujiki, Naomi Harada, Naohiko Ohkouchi, Nitrogen isotope ratios of phytoplankton in the northwestern North Pacific, 10th International Conference on the Applications of Stable Isotope Techniques to Ecological Studies (IsoEcol 2016)
11. 吉川知里, 笹井義一, 脇田昌英, 本多牧生, 眞壁明子, 布浦拓郎, 松嶋修一郎, 豊田栄, 吉田尚弘, 小川奈々子, 菅寿美, 大河内直彦, 分子内同位体比を用いた海洋 N₂O モデルの開発, 日本海洋学会 2016 年度春季大会
12. Chisato Yoshikawa, Yoshikazu Sasai, Masahide Wakita, Makio C. Honda, Tetsuichi Fujiki, Naomi Harada, Akiko Makabe, Shuichiro Matsushima, Sakae Toyoda, Naohiro Yoshida, Nanako O. Ogawa, Hisami Suga, Naohiko Ohkouchi, Insight into nitrous oxide production processes in the western North Pacific based on a marine ecosystem isotopomer model, 2016 Ocean Science Meeting
13. 吉川知里, 笹井義一, 眞壁明子, 布浦拓郎, 脇田昌英, 本多牧生, 海洋低次生態系モデルへの亜硝酸塩の導入, 東京大学大気海洋研究所共同利用研究集会「2015 年度海洋生態系モデリングシンポジウム」
14. 吉川知里, 笹井義一, 脇田昌英, 本多牧生, 眞壁明子, 松嶋修一郎, 豊田栄, 吉田尚弘, 小川奈々子, 菅寿美, 大河内直彦, 海洋生態系 同位体分子種モデルを用いた西部北太平洋における N₂O 生成プロセスの解明, 2015 年度日本地球化学会第 62 回年会

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。